

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
13. September 2001 (13.09.2001)

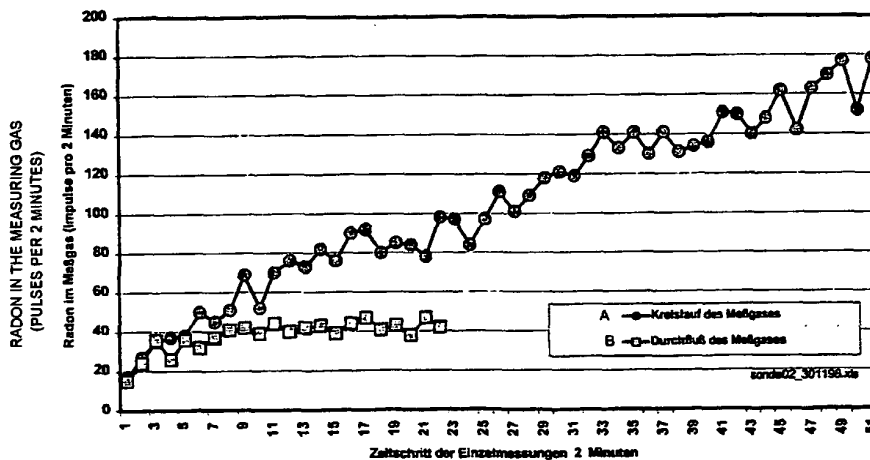
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**PCT WO 01/66227 A2**

- (51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **B01D 53/00** (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **UFZ UMWELTFORSCHUNGSZENTRUM LEIPZIG-HALLE GMBH [DE/DE]**; Permoserstrasse 15, 04318 Leipzig (DE).
- (21) Internationales Aktenzeichen: **PCT/EP01/02566**
- (22) Internationales Anmeldedatum:  
7. März 2001 (07.03.2001)
- (25) Einreichungssprache: **Deutsch** (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **FREYER, Klaus [DE/DE]**; Hans-Scholl-Str. 8, 04454 Holzhausen (DE). **TREUTLER, Hanns-Christian [DE/DE]**; Lessingstr. 6, 05683 Naunhof (DE). **JUST, Günther [DE/DE]**; Seifertshainer Str. 6, 04463 Grosspösna (DE).
- (26) Veröffentlichungssprache: **Deutsch**
- (30) Angaben zur Priorität:  
100 10 558.0 8. März 2000 (08.03.2000) **DE**
- (63) Fortsetzung (CON) oder Teilfortsetzung (CIP) der früheren Anmeldung:  
US 09/180,706 (CIP)  
Angemeldet am 13. November 1998 (13.11.1998)
- (74) Anwälte: **HENGELHAUPT, Jürgen, D. usw.**; Gulde Hengelhaupt Ziebig, Schützenstrasse 15 - 17, 10117 Berlin (DE).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR QUICKLY AND CONTINUALLY DETECTING CHANGES IN THE CONCENTRATION OF RADON GAS THAT IS DISSOLVED IN WATER

(54) Bezeichnung: VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR SCHNELLEN UND KONTINUIERLICHEN ERFASSUNG VON ÄNDERUNGEN DER KONZENTRATION VON IN WASSER GELÖSTEM RADON-GAS



TIME INTERVALS OF THE INDIVIDUAL MEASUREMENTS: 2 MINUTES

A...CIRCULATION OF THE MEASURING GAS  
B...PASSAGE OF THE MEASURING GAS

(57) Abstract: The invention relates to a method and a device for continually and especially quickly detecting changes in the concentration of radon gas by means of conversion into a measuring gas (Rn-222) which can be used for varied monitoring, controlling and regulating tasks, whereby said gas is dissolved in water. A membrane is permeable to the radioactive noble gas radon but is essentially impermeable to water. The invention is based upon said membrane being flown round by the radon-containing water on the one side and by a carrier gas on the other side in parallel or in opposite directions and involving flow rates which are optimised respectively. The concentration of radon in the measuring gas is directly proportional to the concentration of radon in water when stable marginal conditions are guaranteed.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 01/66227 A2

(81) **Bestimmungsstaaten (national):** AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Veröffentlicht:**

— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

(84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK,

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(57) **Zusammenfassung:** Die Erfindung beschreibt ein Verfahren und eine Vorrichtung zur kontinuierlichen und insbesondere schnellen Erfassung von Änderungen der Konzentration von in Wasser gelöstem Radon-Gas durch Überführung in ein Meßgas (Rn-222), welche für vielfältige Überwachungs-, Kontroll- und Regelaufgaben herangezogen werden kann. Die Erfindung basiert darauf, daß eine für das radioaktive Edelgas Radon durchlässige, aber für Wasser weitgehend undurchlässige Membran auf der einen Seite vom radonhaltigen Wasser und auf der anderen Seite von einem Trägergas mit jeweils optimierten Strömungsgeschwindigkeiten parallel oder im Gegenstrom umspült wird. Bei Gewährleistung stabiler Randbedingungen ist die Konzentration von Radon im Meßgas direkt proportional der Konzentration von Radon im Wasser.

5                   Verfahren und Vorrichtung zur schnellen und  
kontinuierlichen Erfassung von Änderungen der Konzentration  
von in Wasser gelöstem Radon-Gas

10

### Beschreibung

15

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur kontinuierlichen  
und insbesondere schnellen Erfassung von Änderungen der  
Konzentration von in Wasser gelöstem Radon-Gas durch Über-  
führung in ein Meßgas (Rn-222), welches für vielfältige  
20 Überwachungs-, Kontroll- und Regelaufgaben herangezogen  
werden kann.

Sie betrifft auch eine spezielle Vorrichtung zur schnellen  
und kontinuierlichen Überführung von im Wasser gelöstem Ra-  
don-Gas (Rn-222) in ein Meßgas und dessen Weiterleitung in  
25 extra hierfür angefertigte oder handelsübliche Detektions-  
systeme für Radon-Gas (Rn-222).

Das natürliche radioaktive Edelgas Radon (Rn-222) entsteht  
30 überall und ständig neu, wenn das in der Zerfallsreihe von  
Uran-238 gebildete Radium-226 zerfällt. Da alle geologi-  
schen Materialien mehr oder weniger Uran enthalten, ist  
auch Radon allgegenwärtig und findet sich in unter-  
schiedlichen Konzentrationen auch im Wasser. Für die meß-  
35 technische Erfassung der Konzentration von Radon im Wasser  
existieren zahlreiche vom Wirkprinzip her unterschiedliche  
Methoden, welche im Feld, aber auch im Labor eingesetzt  
werden können.

5 Die kontinuierliche Erfassung auftretender Konzentrations-  
änderungen von Radon im Wasser ist für zahlreiche mögliche  
Anwendungen von großem Interesse. Die mit verschiedenen  
Verfahren bisher realisierten zeitlichen Auflösungen erwei-  
sen sich allerdings in vielen Fällen als nicht ausreichend  
10 bzw. als ungeeignet, so daß die gewünschten Informationen  
nicht oder nur unzureichend zur Verfügung gestellt werden  
konnten.

Als Beispiele für den möglichen Einsatz sollen hier stell-  
vertretend die Optimierung der Probennahme von Grundwas-  
sermeßstellen, die Überwachung der Radonführung im Quell-  
wasser als einer von mehreren Einträgen zur Erdbebenfor-  
schung und weiterhin die Kontrolle balneologischer Anwen-  
dungen von Radon im Wasser (Qualitätssicherung) genannt  
20 werden.

Bekannt ist die kontinuierliche Messung der Konzentration  
von Radon ( $\text{Rn-222}$ ) in Wasser durch Überführung des Radons  
aus dem Wasser durch eine wasserdichte, gasdurchlässige  
25 Membran, z.B. in Form eines Schlauches, in einen Gaskreis-  
lauf (z.B. Luft), der durch ein Radonmeßgerät geleitet  
wird, in dem die Radonkonzentration in dem Gaskreislauf  
durch Messung der Aktivität des Radons und seiner Fol-  
geprodukte bestimmt wird. (H. Surbeck, A Radon-in Water Mo-  
nitor Based on Fast Gas Transfer Membranes, Int. Conf.  
30 Technologically Enhanced Natural Radioactivity (TENR)  
Caused by Non-uranium Mining, October 16-19, 1996, Szczyrk,  
Poland). In dem geschlossenen Gaskreislauf baut sich, zeit-  
lich entsprechend den Halbwertszeiten der Folgeprodukte  
35 verzögert, eine der Radonkonzentration im Wasser proportio-  
nale Aktivitätskonzentration auf.

5 Der Mangel dieser Vorrichtung ist, daß infolge dieser zeitlichen Verzögerung des Aktivitätsaufbaus eine kontinuierliche Bestimmung der Radonkonzentration im Wasser, insbesondere eine Konzentrationsänderung, nur mit einer zeitlichen Auflösung größer 15 min möglich ist.

10 Weiterhin beschreibt die WO 97/43637 ein Verfahren und Vorrichtungen zur Charakterisierung von Grundwassermeßstellen durch Unterscheidung von Grundwasser und Standwasser und dient beispielsweise zur Bestimmung der für repräsentative Beschaffenheitsuntersuchungen optimalen Abpumpzeiten  
15 von Grundwassermeßstellen sowie der Erkennung und Lokalisierung von Defekten an Grundwassermeßstellen. Die Erfindung basiert auf der Messung der Radonaktivitätskonzentration bzw. der Gesamtaktivitätskonzentration der Grundwasserproben.  
20

Die Messung der Konzentrationen gestattet die Bestimmung des Verhältnisses von Grundwasser zu Standwasser in einer Grundwassermeßstelle.

25 Es werden eine neuartige Durchflußmeßzelle sowie eine Bohrlochsonde beschrieben.

Bei allen bekannten Verfahren und Vorrichtungen wird das  
30 Meßgas im Kreislauf durch den Diffusionsschlauch und die Meßkammer umgewälzt. Dadurch baut sich entsprechend der Halbwertszeit des Radon-222 von 3,8 Tagen langsam ein Konzentrationsgleichgewicht zwischen dem umgebenden Wasser und dem Meßgas auf. Die relativ lange Halbwertszeit verhindert die Registrierung schneller (im Minutenbereich)  
35 Änderungen der Radonkonzentration im Wasser.

5 Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren und eine Vorrichtung zur schnellen und kontinuierlichen Erfassung von Änderungen der Konzentration von in Wasser gelöstem Radon-Gas anzugeben, die eine wirtschaftliche, technisch wenig aufwendige Lösung darstellen und in vielen Anwendungsbereichen, sei es mobil oder stationär, die Erfassung schneller Änderungen der Konzentration von Radon im Wasser mit möglichst hoher zeitlicher Auflösung gestatten.

15 Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst durch die Merkmale im kennzeichnenden Teil der Ansprüche 1 und 7.

Zweckmäßige Ausgestaltungen der Erfindung sind in Unteransprüchen beschrieben.

20 Ein besonderer Vorteil der Erfindung besteht darin, daß die bei allen bekannten Lösungen vorhandene enorme zeitliche Verzögerung bei der Erfassung der Konzentrationsänderungen des in Wasser gelösten Radon-Gases dadurch verhindert bzw. minimiert wird, daß der Gaskreislauf geöffnet wird.

25 Im Unterschied zu den bekannten Verfahren und Vorrichtungen, bei denen eine definierte Wassermenge quasistationär einen Diffusionsschlauch umgibt, wird nun erfindungsgemäß ständig radonfreies Meßgas auf der einen Seite des Diffusionsschlauches zugeführt. Das Meßgas nimmt das radioaktive Edelgas Radon, welches aus dem parallel oder im Gegenstrom zum Meßgas auf der anderen Seite des Diffusionsschlauches mit einer optimierten Strömungsgeschwindigkeit ständig neu zugeführten Wasser durch den Diffusionsschlauch hindurch diffundiert, auf und leitet es zu einer geeigneten Meßeinrichtung.

30

35

Bei Gewährleistung stabiler Randbedingungen ist die Konzentration von Radon im Meßgas direkt proportional der Konzentration von Radon im Wasser. Bei Verwendung von besonders geeigneten Meßeinrichtungen lassen sich auch bei geringen Aktivitätskonzentrationen von wenigen Bequerel Radon im Liter Wasser zeitliche Auflösungen im Bereich von ca. 2 Minuten und darunter erzielen.

Die Dimensionierung und die geometrische Form der Membran und die für das Wasser und das Trägergas erforderlichen Strömungsgeschwindigkeiten können bei Bedarf entsprechend den konkret vorliegenden Aufgabenstellungen, dem zu überwachenden Konzentrationsbereich und der gewünschten zeitlichen Auflösung optimiert werden.

Dadurch, daß ständig neues, radonfreies Gas, z.B. Luft, durch den vom Wasser umgebenen Gasraum (z.B. Diffusions-schlauch) in das Radonmeßgerät gepumpt, dort kontinuierlich gemessen, und danach an die Umgebung abgegeben wird, wird vermieden, daß sich in dem Meßgas Folgenuklide des Radon über längere Zeit aufbauen können und damit den Meßeffekt zeitlich verzögern.

Erstmals wird hierdurch auch möglich, die Abnahme von Radonkonzentration direkt zu erfassen.

Die Erfindung soll nachstehend anhand von Ausführungsbeispielen näher erläutert werden.

Es zeigen:

Fig. 1 Ein Diagramm zum Vergleich zwischen Kreislauf und Durchfluß des Messgases, Durchfluß von ca. 12 Liter Leitungswasser pro Minute durch die Sonde (Spezifische Aktivität: ca. 1 Bq Radon pro Liter Wasser)

5 Wird, wie in Fig. 1 dargestellt, ein Meßgas im Kreislauf  
gefördert (Punkte), wie es bei den bisher angewendeten Meß-  
verfahren der Fall gewesen ist, so wird die Meßzeile er-  
heblich kontaminiert und ist nicht mehr in der Lage, ge-  
ringe Aktivitätsdifferenzen mit der gewünschten Zeitauf-  
10 lösung erfassen zu können. Der Gleichgewichtszustand wird  
erst nach ca. 2 Stunden erreicht.

Wird ständig neues Meßgas im Durchflußmodus herangeführt  
(Quadrate), so baut sich nach wenigen Minuten ein konstan-  
15 tes Meßsignal auf, welches der spezifischen Aktivität von  
Radon im Wasser weitgehend proportional ist, auf kurzfri-  
stige Aktivitätsänderungen schnell reagiert und nur gering-  
fügiger Korrekturen bedarf.

20 Die Erfindung ist nicht beschränkt auf die hier be-  
schriebenen Ausführungsbeispiele. Vielmehr ist es möglich,  
durch geeignete Kombination der genannten Mittel und Merk-  
male weitere Ausführungsvarianten zu realisieren, ohne den  
Rahmen der Erfindung zu verlassen.



**Patentansprüche**

- 5
- 10
- 15
- 20
- 25
- 30
- 35
1. Verfahren zur kontinuierlichen und insbesondere schnellen Erfassung von Änderungen der Konzentration von in Wasser gelöstem Radon-Gas unter Verwendung wasserdichter, gasdurchlässiger Membranen, dadurch gekennzeichnet, daß ohne Realisierung eines Kreislaufes ständig neues, radonfreies Gas durch einen vom Wasser umgebenen, durch die wasserdichte, gasdurchlässige Membran abgetrennten Gasraum in ein Radonmeßgerät gepumpt und dort kontinuierlich gemessen wird.
  2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das radonfreie Gas Luft ist.
  3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Gas nach Verlassen des Radonmeßgerätes an die Umgebung abgegeben wird.
  4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Wasser und das Meßgas im Gegenstrom entlang der Membran geführt werden.

- 5        5.        Verfahren nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet, daß das Wasser und das Meßgas parallel zu der Membran geführt werden.
- 10       6.        Verfahren nach einem der voranstehenden Ansprüche 1 bis 5,  
dadurch gekennzeichnet, daß der Gasraum ein Diffusionsschlauch ist.
- 15       7.        Vorrichtung zur kontinuierlichen und insbesondere schnellen Erfassung von Änderungen der Konzentration von in Wasser gelöstem Radon-Gas,  
dadurch gekennzeichnet, daß ein Gasraum einen Eingang und einen Ausgang aufweist und im strömenden Wasser angeordnet ist, wobei der Eingang des Gasraumes mit einer Gasquelle und der Ausgang des Gasraumes mit dem Eingang eines Radonmeßgerätes verbunden ist.
- 20       8.        Vorrichtung nach Anspruch 7,  
dadurch gekennzeichnet, daß der Ausgang des Radonmeßgerätes in die Umgebungsluft mündet.
- 25       9.        Vorrichtung nach Anspruch 7  
dadurch gekennzeichnet, daß der Gasraum ein Diffusionsschlauch ist.
- 30       35

1/1

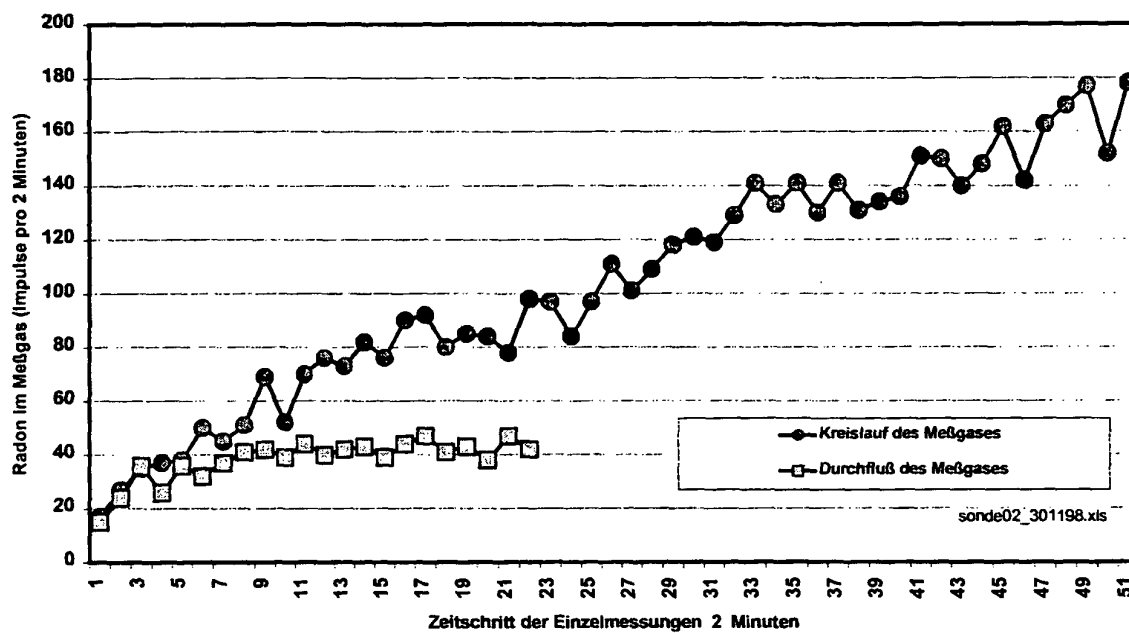


Fig. 1

